

RO/KR 26.03.2004  
Rec'd PCT/PTO 21 APR 2005

대한민국 특허청  
KOREAN INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE

RECD 13 APR 2004

WIPO

PCT

별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto  
is a true copy from the records of the Korean Intellectual  
Property Office.

출원번호 : 10-2003-0019528 ✓  
Application Number

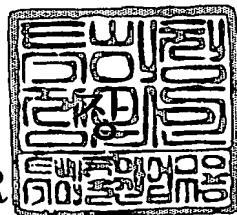
출원년월일 : 2003년 03월 28일  
Date of Application MAR 28, 2003 ✓

출원인 : 한국화학연구원  
Applicant(s) KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY

2004 년 03 월 26 일



특허청  
COMMISSIONER



PRIORITY  
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

## 【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2003.03.28
【발명의 명칭】	장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법
【발명의 영문명칭】	Composition and Preparing method of strontium silicate for long-wavelength UV
【출원인】	
【명칭】	한국화학연구원
【출원인코드】	3-1998-007765-1
【대리인】	
【성명】	허상훈
【대리인코드】	9-1998-000602-6
【포괄위임등록번호】	1999-004160-2
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김창해
【성명의 영문표기】	KIM, Chang Hae
【주민등록번호】	601226-1326919
【우편번호】	305-755
【주소】	대전광역시 유성구 어은동 한빛아파트 138동 1402호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	박정규
【성명의 영문표기】	PARK, Joung Kyu
【주민등록번호】	680105-1009613
【우편번호】	305-340
【주소】	대전광역시 유성구 도룡동 431번지 공동관리아파트 7동 305호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	박희동
【성명의 영문표기】	PARK, Hee Dong
【주민등록번호】	510520-1100111

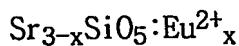
【우편번호】 449-908  
【주소】 경기도 용인시 기흥읍 영덕리 세종그랑시아 104동 301호  
【국적】 KR  
【심사청구】 청구  
【취지】 특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사 를 청구합니다. 대리인 허상훈 (인)  
【수수료】  
【기본출원료】 13 면 29,000 원  
【가산출원료】 0 면 0 원  
【우선권주장료】 0 건 0 원  
【심사청구료】 4 항 237,000 원  
【합계】 266,000 원  
【감면사유】 정부출연연구기관  
【감면후 수수료】 133,000 원  
【첨부서류】 1. 요약서·명세서(도면)\_1통

## 【요약서】

### 【요약】

본 발명은 장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 스트론튬실리케이트 모체에 활성제 성분으로 유로퓸옥사이드를 첨가하여 특정 조성으로 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 제조함으로써, 장파장 자외선에서 효율적인 발광을 보여 백색 구현 및 색순도면에서 우수한 성질을 보이므로 이를 이용하여 색순도의 개선이 가능하여 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정디스플레이에 적용하였을 때 매우 높은 발광효율을 가지는 다음 화학식 1로 표시되는 장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법에 관한 것이다.

### 【화학식 1】



상기 화학식 1에서 x는,  $0 < x \leq 1$ 이다.

### 【대표도】

도 2

### 【색인어】

황색 형광물질, 스트론튬실리케이트 형광체, 유로퓸 활성, 장파장 자외선

### 【명세서】

#### 【발명의 명칭】

장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법{Composition and Preparing method of strontium silicate for long-wavelength UV}

#### 【도면의 간단한 설명】

도 1은 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 활용한 발광다이오드의 개략도를 나타낸 것이다.

도 2는 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체( $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$ )를 이용한 백색 발광 다이오드칩(InGaN)과 YAG:Ce의 황색 형광체를 이용한 백색 발광 다이오드칩(InGaN)의 상대휘도 발광 스펙트럼을 나타낸 것이다.

도 3은 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체( $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$ )를 장파장 자외선 발광다이오드 칩(InGaN)에 첨가한 량에 따른 색좌표의 변화(田)를 나타낸 것이다.

#### 【발명의 상세한 설명】

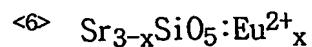
#### 【발명의 목적】

#### 【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】

<4> 본 발명은 장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 스트론튬실리케이트 모체에 활성제 성분으로 유로퓸옥사이드를 첨가하여 특정 조성으로 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 제조함으로써, 장파장 자외선에서 효

율적인 발광을 보여 백색 구현 및 색순도면에서 우수한 성질을 보이므로 이를 이용하여 색순도의 개선이 가능하여 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정디스플레이에 적용하였을 때 매우 높은 발광효율을 가지는 다음 화학식 1로 표시되는 장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법에 관한 것이다.

<5> [화학식 1]



<6> 상기 화학식 1에서 x는,  $0 < x \leq 1$ 이다.

<7> 현재 청색, 녹색 및 적색 등의 발광 다이오드들을 제조하기 위해서는 InGaN, GaN, GaAs, ZnO 등의 서로 다른 기판을 제조하여야 된다. 이러한 제조 공정은 서로 다른 반도체 박막을 활용해야 하기 때문에 발광 다이오드 제조 공정에 투자비가 많이 들고 제조 단가가 비싸지는 문제점을 가지고 있다. 따라서 같은 반도체 박막을 이용하여 청색, 녹색 및 적색발광을 하는 발광 다이오드 제조가 가능하다면 공정이 간단해 지기 때문에 제조 비용 및 투자비용을 획기적으로 줄일 수 있다. 또한 조명, 노트북, 핸드폰 등의 액정 디스플레이용 후면광원으로 각광받는 백색 발광 다이오드는 현재 청색 발광 다이오드에 황색(560 nm)을 내는 YAG:Ce 형광체를 결합하여 제조되어지고 있다.

<8> 그러나, 청색 발광 다이오드를 활용한 백색 발광 다이오드는 여기 에너지원으로 450 ~ 470 nm의 파장을 가지고 있기 때문에 거기에 적합한 형광물질에 많은 문제점을 가지고 있다. 즉, 450 ~ 470 nm 대의 파장을 가지는 청색 발광 다이오드를 이용해서는 YAG:Ce을 이용한 백

색 발광 다이오드 밖에 구현이 어렵다. 이러한 문제점들을 해결하기 위해 YAG:Ce 이외에 황색을 구현하는 새로운 형광물질의 개발이 시급하다.

### 【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

- <10> 이에, 본 발명자들은 상기와 같은 기존 형광물질이 가지는 문제점을 해결하는 새로운 황색이 구현되는 형광물질을 개발하기 위해 연구 노력한 결과, 스트론튬실리케이트 모체에 활성제 성분으로 유로퓸옥사이드를 첨가하여 특정조성으로 형광체를 제조하면, 460 nm의 자외선에서 황색을 낸다는 사실을 알게되어 본 발명을 완성하였다.
- <11> 따라서, 본 발명은 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정디스플레이에 적용하였을 때 매우 높은 발광효율을 가지는 장파장 자외선용 스트론튬실리케이트계 황색 형광체와 이의 제조 방법을 제공하는데 그 목적이 있다.

### 【발명의 구성】

- <12> 본 발명은 상기 화학식 1로 표시되는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 그 특징으로 한다.
- <13> 본 발명은 스트론튬카보네이트( $\text{SrCO}_3$ ), 실리카( $\text{SiO}_2$ ), 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )를 칭량하여 용매하에서 혼합하는 1 단계; 상기 1 단계의 혼합물을 오븐에서  $100 \sim 150^\circ\text{C}$ , 1 ~ 24 시간동안 건조하는 2 단계; 및 상기 2 단계의 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고, 수소 혼합가스의 환원 분위기하에서  $800 \sim 1500^\circ\text{C}$ , 1 ~ 48 시간동안 전기로에서 열처리하는 3

단계로 구성된 상기 화학식 1의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의 제조방법을 또 다른 특징으로 한다.

- <14> 이와 같은 본 발명을 더욱 상세히 설명하면 다음과 같다.
  - <15> 본 발명은 스트론튬실리케이트 모체에 활성제로 유로퓸을 특정 조성으로 첨가하여 발광 다이오드에서 나오는 청색의 광(460 nm)을 스트론튬실리케이트 형광체에 통과시켜 일부의 광은 스트론튬실리케이트로 이루어진 황색 형광체를 여기시켜 황색을 내는데 사용되고 나머지 광은 청색광으로 그대로 투과하게 되고, 이렇게 황색 형광체를 통하여 여기된 광과 황색 형광체를 투과한 광이 서로 중첩하여 백색을 구현하는 황색 형광체를 얻는 것이다.
  - <16> 상기와 같은 본 발명에 다른 스트론튬실리케이트계 황색 형광체는 다음과 같은 방법으로 제조한다.
  - <17> 먼저, 1 단계로 스트론튬카보네이트( $\text{SrCO}_3$ ), 실리카( $\text{SiO}_2$ ), 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )를 원하는 조성에 따른 각각의 소정비가 되도록 칭량하여 효과적인 혼합을 위해 용매(아세톤) 하에서 볼밀링(ball milling) 또는 마노 유발과 같은 혼합기를 이용하여 균일한 조성이 되도록 혼합한다. 상기에서 활성제로 사용되는 유로퓸옥사이드는 스트론튬카보네이트에 대하여 0.001 ~ 0.5 mol, 바람직하기로는 0.001 ~ 0.3 mol로 첨가하는데, 만일 그 사용량이 0.001 mol 미만이면 활성제로서의 기능을 하기에 충분한 양이 되지 못하며, 0.5 mol를 초과하면 농도 소광 현상에 따른 휘도 저하가 일어난다.
  - <18> 다음 2 단계로 상기 1 단계의 혼합물을 오븐에 넣고 100 ~ 150 °C, 1 ~ 24 시간동안 건조한다.

- <19> 3 단계는 상기 2 단계의 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고 수소 혼합가스의 환원 분위기하에서 800 ~ 1500 °C, 1 ~ 48 시간동안 전기로에서 열처리하여 상기 화학식 1로 표시되는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 제조한다. 이때, 열처리 온도가 800 °C 미만이면 스트론튬실리케이트의 결정이 완전하게 생성되지 못하게 되어 발광효율이 감소하게 되고, 1500 °C를 초과하면 과반응에 의해 휘도가 저하되는 문제가 발생한다. 또한, 상기 수소 혼합가스는 환원 분위기를 위하여 수소가 2 ~ 25% 혼합된 질소 가스를 사용하는 것이 좋다.
- <20> 상기와 같이 소성하여 얻어진 형광체 분말에 대하여 460 nm의 여기파장으로 빛 발광 스펙트럼(Photoluminescence, PL)을 측정한 결과 570 nm에서 주피크를 갖는 황색 스펙트럼을 보임을 확인하였다.
- <21> 이와 같이 본 발명은 스트론튬실리케이트를 기본으로 하고 유로퓸 성분이 활성제로 도핑된 황색 형광체를 형성하여 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정 디스플레이에 적용되었을 때 매우 높은 발광효율을 가질 것이다.
- <22> 이와 같은 본 발명을 실시예에 의거하여 상세하게 설명하겠는 바, 본 발명이 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- <23> 실시예 :  $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$  형광체의 제조
- <24> 스트론튬카보네이트( $\text{SrCO}_3$ )와 실리카( $\text{SiO}_2$ ), 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )를 원료물질로 하여 조성에 따른 각각의 소정비가 되도록 평량하여 아세톤 용매 하에서 볼밀링(ball milling)을 이용하여 균일한 조성이 되도록 충분히 혼합하였다. 그 후 이 혼합물을 오븐에 넣고 120 °C

에서 24시간동안 건조하였다. 건조한 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고 전기로를 사용하여 40시간 동안 5 ~ 25%의 수소 혼합가스를 사용하여 환원 분위기 하에서 1000 °C에서 열처리하여 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 제조하였다.

<25> 실험 예 1:  $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$  황색 형광체를 이용한 백색 발광 다이오드칩의 제조 및 이들의 상대회도 측정

<26> 상기 실시예에서 제조한 스트론튬실리케이트계 황색 형광체( $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$ )와 460 nm에서 발광을 하는 InGaN의 발광 다이오드를 사용하여 도 1에 나타낸 것과 같이 장파장 자외선 백색 발광 다이오드칩을 제조하였다.

<27> 본 발명의 형광체를 사용하여 제조된 다이오드칩과 기존의 다이오드칩을 서로 비교실험하기 위하여 상용 YAG 형광체의 경우에도 460 nm의 발광을 하는 InGaN 칩을 사용하였다.

<28> 도 2에 본 발명의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체를 이용하여 제조한 장파장 자외선 발광 다이오드칩(InGaN)과 YAG:Ce 황색 형광물질을 활용한 장파장 자외선 발광다이오드 칩(InGaN)의 빛발광 스펙트럼을 측정한 결과를 나타내었다. 도 2에 나타난 바와 같이, 본 발명의 형광체를 사용하여 제조된 발광 다이오드칩은 450 ~ 650 nm의 넓은 파장의 스펙트럼을 보였으며, 주피크도 넓게 변하므로 색순도의 개선이 가능하여 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정디스플레이에 고효율 황색 적용물질로서 적용되어 질 수 있음을 확인하였다.

<29> 실험 예 2:  $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$  황색 형광체의 첨가량에 따른 색좌표의 변화

- 30> 상기 실시예에서 얻은 스트론튬실리케이트계 황색 형광체( $\text{Sr}_{2.5}\text{SiO}_5:\text{Eu}^{2+}_{0.5}$ )를 장파장 자외선 발광다이오드 칩(InGaN)에 첨가한 량에 따른 색좌표의 변화(田)를 도 3에 나타내었다. 또한 발광 다이오드칩(InGaN) 자체의 좌표(●)와 YAG:Ce 황색 형광물질을 활용한 장파장 자외선 발광다이오드칩(InGaN)의 좌표(◆)도 함께 나타내었다.
- 31> 도 3에 나타난 바와 같이, 본 발명의 형광체를 사용하여 제조된 발광 다이오드칩도 YAG:Ce 황색 형광물질을 사용한 것과 같이 백색을 구현할 수 있다

#### 【발명의 효과】

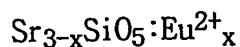
- 32> 상술한 바와 같이, 본 발명의 스트론튬실리케이트 황색 형광체는 450 nm에서 675 nm에 이르기까지 넓은 파장의 스펙트럼을 보이며 450 ~ 480 nm의 여기에너지지를 사용하여도 효율적인 발광을 보이므로 백색 구현에 있어서 색순도면에서도 우수한 성질을 보이므로 이를 이용하여 색순도의 개선이 가능하여 장파장 자외선 발광 다이오드 및 능동 발광형 액정디스플레이에 고 효율 황색 형광물질로서 적용되어질 수 있다.

## 【특허청구범위】

## 【청구항 1】

다음 화학식 1로 표시되는 것임을 특징으로 하는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체.

## [화학식 1]



상기 화학식 1에서, x는  $0 < x \leq 1$ 이다.

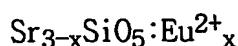
## 【청구항 2】

스트론튬카보네이트( $\text{SrCO}_3$ ), 실리카( $\text{SiO}_2$ ), 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )를 청량하여 용매 하에  
서 혼합하는 1 단계;

상기 1 단계의 혼합물을 오븐에서  $100 \sim 150^\circ\text{C}$ , 1 ~ 24 시간동안 건조하는 2 단계;  
및

상기 2 단계의 건조된 혼합물을 고순도 알루미나 보트에 넣고, 수소 혼합가스의 환원 분  
위기하에서  $800 \sim 1500^\circ\text{C}$ , 1 ~ 48 시간동안 전기로에서 열처리하는 3 단계  
로 구성된 것임을 특징으로 하는 다음 화학식 1의 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의  
제조방법.

## [화학식 1]



상기 화학식 1에서, x는  $0 < x \leq 1$ 이다.

**【청구항 3】**

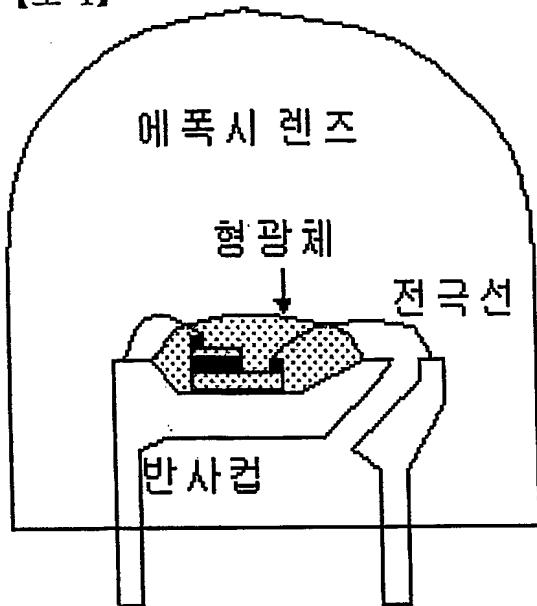
제 2 항에 있어서, 상기 1 단계의 유로퓸옥사이드( $\text{Eu}_2\text{O}_3$ )는 스트론튬카보네이트( $\text{SrCO}_3$ )에 대하여 0.001 ~ 0.5 몰비의 범위로 첨가하는 것을 특징으로 하는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의 제조방법.

**【청구항 4】**

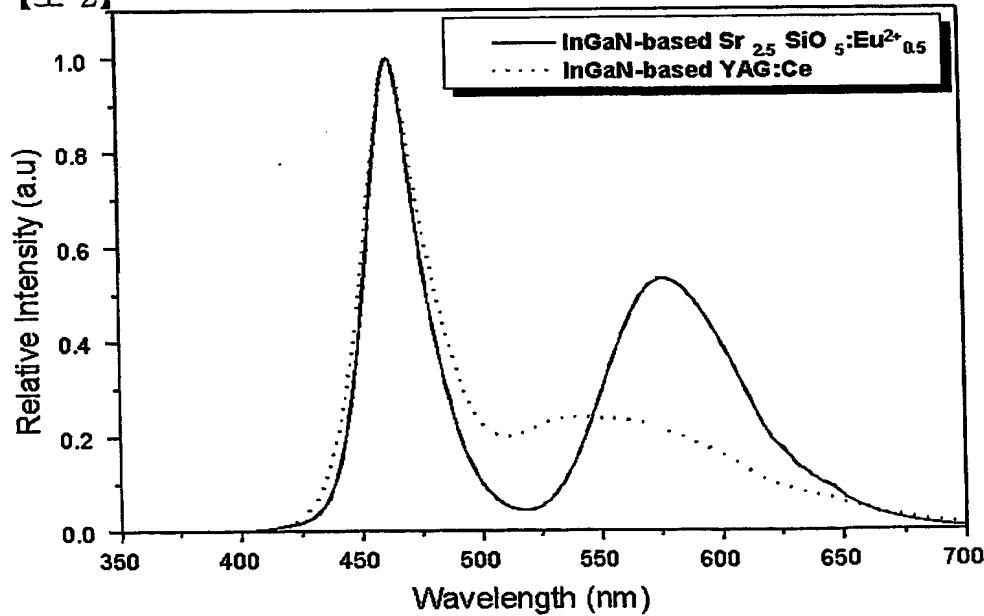
제 2 항에 있어서, 상기 2 단계의 수소 혼합가스는 수소함량이 2 ~ 25%인 질소를 사용하는 것을 특징으로 하는 스트론튬실리케이트계 황색 형광체의 제조방법.

## 【도면】

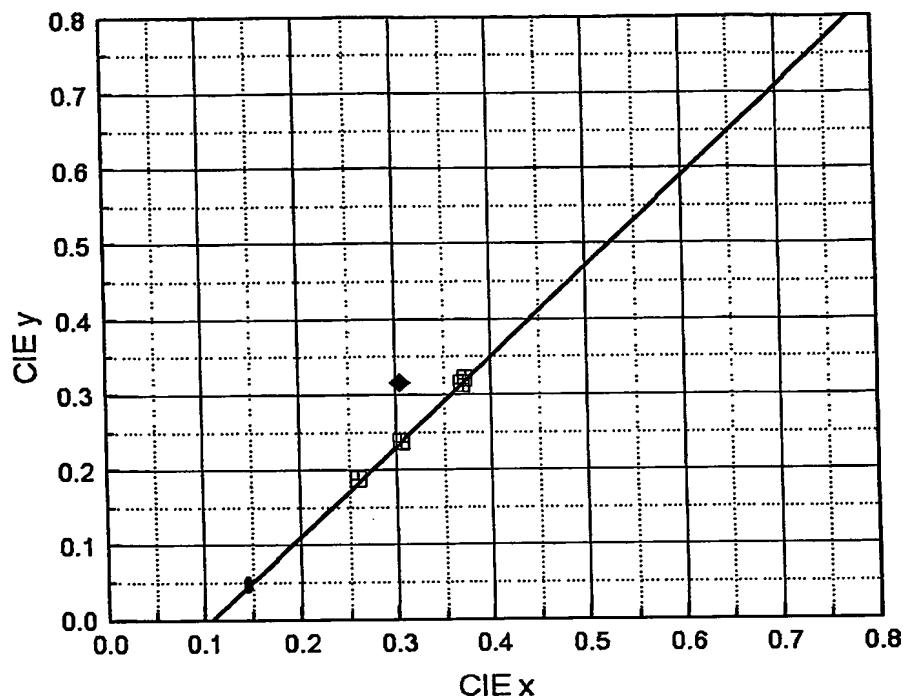
【도 1】



【도 2】



【도 3】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**